

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Method and apparatus for selective catalytic oxidation of carbon monoxidPatent Number: US5874051

Publication date: 1999-02-23

Inventor(s): MEGEDE DETLEF ZUR (DE); BENZ UWE (DE); HEIL DIETMAR (DE); STROBEL BARBARA (DE); WIESHEU NORBERT (DE)

Applicant(s):: DAIMLER BENZ AG (DE)

Requested Patent: DE19544895

Application Number: US19960753809 19961202

Priority Number (s): DE19951044895 19951201

IPC Classification: B01D53/34

EC Classification: B01D53/86H, B01J8/02H, B01J12/00P, C01B3/58, H01M8/06C, B01J19/24R4Equivalents: EP0776861

Abstract

In a method and apparatus for selective catalytic oxidation of carbon monoxide, the gas mixture and an additionally added oxidizing gas are conducted through a reactor containing the catalyst. Oxidizing gas is added at several points along the mixed gas flow path with a controlled or regulated through flow volume. The mixed gas stream is cooled passively by static mixing structures located in the inlet area of the CO-oxidation reactor. By controlling exothermal CO oxidation along the reactor path, a very variable process guidance is provided, that can be adjusted to individual situations.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

THIS PAGE BLANK (USPTO)

⑯ BUNDESREPUBLIK

DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑯ Patentschrift
⑯ DE 195 44 895 C 1

⑮ Int. Cl. 6:
C 01 B 3/58
B 01 D 53/86
C 10 K 3/04
H 01 M 8/06 ✓

⑯ Aktenzeichen: 195 44 895.2-41
⑯ Anmeldetag: 1. 12. 95
⑯ Offenlegungstag: —
⑯ Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: 27. 2. 97 ✓

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

⑯ Patentinhaber:

Daimler-Benz Aktiengesellschaft, 70567 Stuttgart,
DE

⑯ Erfinder:

Heil, Dietmar, Dipl.-Ing., 88693 Deggendorf, DE;
Strobel, Barbara, Dipl.-Ing., 89231 Neu-Ulm, DE;
Wiesheu, Norbert, Dipl.-Ing., 89312 Günzburg, DE;
zur Megede, Detlef, Dipl.-Chem. Dr., 89347
Bubesheim, DE; Benz, Uwe, Dipl.-Ing., 88690
Uhldingen-Mühlhofen, DE

⑯ Für die Beurteilung der Patentfähigkeit
in Betracht gezogene Druckschriften:

DE 43 34 983 A1
DE 43 34 981 A1

⑯ Verfahren und Vorrichtung zur selektiven katalytischen Oxidation von Kohlenmonoxid

⑯ Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren dieser Art,
bei dem das Gasgemisch und ein zusätzlich zugeführtes
oxidierendes Gas durch einen das Katalysatormaterial ent-
haltenden Reaktor hindurchgeleitet wird.

Es wird vorgeschlagen, das oxidierende Gas an mehreren
Stellen längs des Gasgemischströmungsweges mit einer
jeweils gesteuerten oder geregelten Durchflußmenge einzu-
leiten. Außerdem wird vorgeschlagen, den Gasgemisch-
strom durch im Eingangsbereich des CO-Oxidationsreaktors
angeordnete statische Mischerstrukturen passiv zu kühlen.
Diese gezielte Beeinflussbarkeit der exothermen CO-Oxa-
tion längs des Reaktorweges erlaubt eine sehr variable und
auf die jeweilige Situation abstimmbare Prozeßführung.
Verwendung z. B. bei der Wasserstoffgewinnung durch
Methanolreformierung für brennstoffzellengetriebene Kraft-
fahrzeuge.

DE 195 44 895 C 1

DE 195 44 895 C 1

Beschreibung

Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zur selektiven katalytischen Oxidation von in einem wasserstoffhaltigen Gasgemischstrom enthaltenem Kohlenmonoxid unter mehrfacher Zugabe eines oxidierenden Gases, bei dem der Gasgemischstrom durch einen das Katalysatormaterial enthaltenden Reaktor hindurchgeleitet wird, sowie auf eine Vorrichtung zur Durchführung dieses Verfahrens.

Verfahren zur selektiven katalytischen Oxidation von Kohlenmonoxid, das in einem wasserstoffhaltigen Gasgemischstrom enthalten ist, werden beispielsweise im Rahmen einer katalytischen Ammoniakherstellung, siehe die Offenlegungsschrift DE 29 30 214 A1, oder im Rahmen einer Bereitstellung von Wasserstoff als Brennstoff für eine Brennstoffzelle, siehe die Offenlegungsschrift WO 93/19005 A1, angewendet. Es sind bereits eine Vielzahl von Verfahren und Vorrichtungen mit geeigneten Katalysatormaterialien für diese selektive katalytische Kohlenmonoxidoxidation bekannt, neben den obigen Druckschriften sei hierzu auf die Auslegeschrift DE-AS 15 67 492 und die Offenlegungsschrift JP 3-208801 (A) hingewiesen. In der letztgenannten Druckschrift erfolgt die Oxidation mit zwei parallelen Reaktoren, denen der Gasgemischstrom und das oxidierende Gas abwechselnd intermittierend zugeführt werden, wobei jeweils ein Reaktor Kohlenmonoxid adsorbiert, während im anderen das zuvor adsorbierte Kohlenmonoxid oxidiert wird. Bei dem in der genannten DE 29 30 214 A1 offenbarten Verfahren wird das oxidierende Gas, dort speziell Luft, dem Wasserstoff und Kohlenmonoxid enthaltenden Gasgemischstrom vor dem Kohlenmonoxid-Oxidationsreaktor zugemischt und gemeinsam mit diesem in den Reaktor eingeleitet.

In der erwähnten WO 93/19005 A1 ist ein ein- oder mehrstufiger Reaktor, bei dem jede Stufe wiederum aus einer oder mehreren parallelen Reaktoreinheiten bestehen kann, zur selektiven katalytischen Kohlenmonoxidoxidation beschrieben, dem eingangsseitig ein im wesentlichen Wasserstoff sowie geringe Mengen Kohlenmonoxid enthaltender Gasgemischstrom zugeführt wird, der beispielsweise von einer Heißdampfreformierung eines Kohlenwasserstoffs, wie Methanol, stammt. Als Alternative zu einer Zumischung von Luft oder Sauerstoff zum Gasgemischstrom vor dem Kohlenmonoxid-Oxidationsreaktor wird die Möglichkeit angegeben, das oxidierende Gas direkt in den Reaktionsraum einzuleiten. Der aus dem Kohlenmonoxid-Oxidationsreaktor austretende, von Kohlenmonoxid gereinigte und im wesentlichen nur noch Wasserstoff enthaltende Gasstrom wird als Brennstoff einer Brennstoffzelle zugeführt. Die Entfernung des Kohlenmonoxids verhindert eine schädliche Vergiftung der Brennstoffzelle. Zur Durchführung der selektiven katalytischen Kohlenmonoxidoxidation ist ein zweistufiger Prozeß mit einer höheren Reaktionsraumtemperatur von ungefähr 160°C in der ersten Stufe und einer niedrigeren Reaktionsraumtemperatur von unterhalb 105°C in der zweiten Stufe vorgesehen. Zur Einstellung dieser Temperaturen sind die Katalysatorbett-Reaktionsräume mit Kühlschlägen jeweiliger Kühlkreisläufe mit steuerbarer Kühlmitteleindurchflußmenge durchsetzt.

In der Offenlegungsschrift DE 43 34 983 A1 ist ein Verfahren zur Entfernung von Kohlenmonoxid aus einem wasserstoffreichen Gas in mindestens zwei Stufen beschrieben, bei denen es sich um CO-Oxidationsstufen und/oder Methanisierungsstufen handelt. Im Fall der

CO-Oxidation erfolgt diese unter Luftzuspeisung an einem edelmetallhaltigen selektiven Oxidationskatalysator, z. B. aus einem Pt/Al₂O₃, Ru/Al₂O₃- oder Pt-Zeolith-Material.

- 5 In der Offenlegungsschrift DE 43 34 981 A1 ist ein Reaktor zur katalytischen Entfernung von Kohlenmonoxid aus einem wasserstoffreichen Gas mit einem edelmetallhaltigen, selektiven CO-Oxidationskatalysator, offenbart, der eine mit dem Katalysatormaterial beschichtete Struktur umfaßt, die eine turbulente Strömung erzeugt und den Wärmetransport begünstigt.

Der Erfindung liegt als technisches Problem die Bereitstellung eines Verfahrens und einer Vorrichtung der eingangs genannten Art zugrunde, mit denen die Oxidationsreaktion über den Reaktionsweg des Gasgemischstroms hinweg geeignet gesteuert werden kann und bei denen eine Vorkühlung eines von einer Heißdampfreformierung stammenden Gasgemischstroms nicht erforderlich ist.

- 15 20 Dieses Problem wird durch ein Verfahren mit den Merkmalen des Anspruchs 1 sowie eine Vorrichtung mit den Merkmalen des Anspruchs 6 gelöst.

Verfahrensgemäß wird das oxidierende Gas in einer jeweils gesteuerten oder geregelten Durchflußmenge in den CO-Oxidationsreaktor eingeleitet, wodurch die Wärmeentwicklung der exotherm verlaufenden CO-Oxidationsreaktion gezielt beeinflußt werden kann. In Kombination mit einer Regelung des Kühlmittelvolumenstroms kann somit das Temperaturniveau der CO-Oxidationsstufe gezielt eingestellt werden. Durch die passive Kühlung des Gasgemischstromes mit Hilfe von statischen Mischerstrukturen kann schließlich die Temperatur des Gasgemischstromes bereits vor dem Erreichen des aktiven Reaktionsvolumens an ein gewünschtes Temperaturniveau angepaßt werden. Dies bietet unter anderem den Vorteil, daß bei Verwendung des Reformats aus einer Methanolheißdampfreformierung als eingangsseitiges Gasgemisch eine Reformatzwischenkühlung vor Einleiten in den CO-Oxidationsreaktor, wie dies in herkömmlichen Anlagen häufig vorgesehen ist, nicht unbedingt erforderlich ist. Das Reformat kann vielmehr direkt in den CO-Oxidationsreaktor eingeleitet werden. Ein Reformatkühler kann daher entfallen oder jedenfalls deutlich geringer als üblich ausgelegt werden. Es ist außerdem kein zusätzlicher, komplexer Wärmekreislauf zur Bereitstellung der erforderlichen Reaktortemperatur notwendig.

- 25 30 35 40 45 50 55 60 65 70 75 80 85 90 95 100 105 110 115 120 125 130 135 140 145 150 155 160 165 170 175 180 185 190 195 200 205 210 215 220 225 230 235 240 245 250 255 260 265 270 275 280 285 290 295 300 305 310 315 320 325 330 335 340 345 350 355 360 365 370 375 380 385 390 395 400 405 410 415 420 425 430 435 440 445 450 455 460 465 470 475 480 485 490 495 500 505 510 515 520 525 530 535 540 545 550 555 560 565 570 575 580 585 590 595 600 605 610 615 620 625 630 635 640 645 650 655 660 665 670 675 680 685 690 695 700 705 710 715 720 725 730 735 740 745 750 755 760 765 770 775 780 785 790 795 800 805 810 815 820 825 830 835 840 845 850 855 860 865 870 875 880 885 890 895 900 905 910 915 920 925 930 935 940 945 950 955 960 965 970 975 980 985 990 995 1000 1005 1010 1015 1020 1025 1030 1035 1040 1045 1050 1055 1060 1065 1070 1075 1080 1085 1090 1095 1100 1105 1110 1115 1120 1125 1130 1135 1140 1145 1150 1155 1160 1165 1170 1175 1180 1185 1190 1195 1200 1205 1210 1215 1220 1225 1230 1235 1240 1245 1250 1255 1260 1265 1270 1275 1280 1285 1290 1295 1300 1305 1310 1315 1320 1325 1330 1335 1340 1345 1350 1355 1360 1365 1370 1375 1380 1385 1390 1395 1400 1405 1410 1415 1420 1425 1430 1435 1440 1445 1450 1455 1460 1465 1470 1475 1480 1485 1490 1495 1500 1505 1510 1515 1520 1525 1530 1535 1540 1545 1550 1555 1560 1565 1570 1575 1580 1585 1590 1595 1600 1605 1610 1615 1620 1625 1630 1635 1640 1645 1650 1655 1660 1665 1670 1675 1680 1685 1690 1695 1700 1705 1710 1715 1720 1725 1730 1735 1740 1745 1750 1755 1760 1765 1770 1775 1780 1785 1790 1795 1800 1805 1810 1815 1820 1825 1830 1835 1840 1845 1850 1855 1860 1865 1870 1875 1880 1885 1890 1895 1900 1905 1910 1915 1920 1925 1930 1935 1940 1945 1950 1955 1960 1965 1970 1975 1980 1985 1990 1995 2000 2005 2010 2015 2020 2025 2030 2035 2040 2045 2050 2055 2060 2065 2070 2075 2080 2085 2090 2095 2100 2105 2110 2115 2120 2125 2130 2135 2140 2145 2150 2155 2160 2165 2170 2175 2180 2185 2190 2195 2200 2205 2210 2215 2220 2225 2230 2235 2240 2245 2250 2255 2260 2265 2270 2275 2280 2285 2290 2295 2300 2305 2310 2315 2320 2325 2330 2335 2340 2345 2350 2355 2360 2365 2370 2375 2380 2385 2390 2395 2400 2405 2410 2415 2420 2425 2430 2435 2440 2445 2450 2455 2460 2465 2470 2475 2480 2485 2490 2495 2500 2505 2510 2515 2520 2525 2530 2535 2540 2545 2550 2555 2560 2565 2570 2575 2580 2585 2590 2595 2600 2605 2610 2615 2620 2625 2630 2635 2640 2645 2650 2655 2660 2665 2670 2675 2680 2685 2690 2695 2700 2705 2710 2715 2720 2725 2730 2735 2740 2745 2750 2755 2760 2765 2770 2775 2780 2785 2790 2795 2800 2805 2810 2815 2820 2825 2830 2835 2840 2845 2850 2855 2860 2865 2870 2875 2880 2885 2890 2895 2900 2905 2910 2915 2920 2925 2930 2935 2940 2945 2950 2955 2960 2965 2970 2975 2980 2985 2990 2995 3000 3005 3010 3015 3020 3025 3030 3035 3040 3045 3050 3055 3060 3065 3070 3075 3080 3085 3090 3095 3100 3105 3110 3115 3120 3125 3130 3135 3140 3145 3150 3155 3160 3165 3170 3175 3180 3185 3190 3195 3200 3205 3210 3215 3220 3225 3230 3235 3240 3245 3250 3255 3260 3265 3270 3275 3280 3285 3290 3295 3300 3305 3310 3315 3320 3325 3330 3335 3340 3345 3350 3355 3360 3365 3370 3375 3380 3385 3390 3395 3400 3405 3410 3415 3420 3425 3430 3435 3440 3445 3450 3455 3460 3465 3470 3475 3480 3485 3490 3495 3500 3505 3510 3515 3520 3525 3530 3535 3540 3545 3550 3555 3560 3565 3570 3575 3580 3585 3590 3595 3600 3605 3610 3615 3620 3625 3630 3635 3640 3645 3650 3655 3660 3665 3670 3675 3680 3685 3690 3695 3700 3705 3710 3715 3720 3725 3730 3735 3740 3745 3750 3755 3760 3765 3770 3775 3780 3785 3790 3795 3800 3805 3810 3815 3820 3825 3830 3835 3840 3845 3850 3855 3860 3865 3870 3875 3880 3885 3890 3895 3900 3905 3910 3915 3920 3925 3930 3935 3940 3945 3950 3955 3960 3965 3970 3975 3980 3985 3990 3995 4000 4005 4010 4015 4020 4025 4030 4035 4040 4045 4050 4055 4060 4065 4070 4075 4080 4085 4090 4095 4100 4105 4110 4115 4120 4125 4130 4135 4140 4145 4150 4155 4160 4165 4170 4175 4180 4185 4190 4195 4200 4205 4210 4215 4220 4225 4230 4235 4240 4245 4250 4255 4260 4265 4270 4275 4280 4285 4290 4295 4300 4305 4310 4315 4320 4325 4330 4335 4340 4345 4350 4355 4360 4365 4370 4375 4380 4385 4390 4395 4400 4405 4410 4415 4420 4425 4430 4435 4440 4445 4450 4455 4460 4465 4470 4475 4480 4485 4490 4495 4500 4505 4510 4515 4520 4525 4530 4535 4540 4545 4550 4555 4560 4565 4570 4575 4580 4585 4590 4595 4600 4605 4610 4615 4620 4625 4630 4635 4640 4645 4650 4655 4660 4665 4670 4675 4680 4685 4690 4695 4700 4705 4710 4715 4720 4725 4730 4735 4740 4745 4750 4755 4760 4765 4770 4775 4780 4785 4790 4795 4800 4805 4810 4815 4820 4825 4830 4835 4840 4845 4850 4855 4860 4865 4870 4875 4880 4885 4890 4895 4900 4905 4910 4915 4920 4925 4930 4935 4940 4945 4950 4955 4960 4965 4970 4975 4980 4985 4990 4995 5000 5005 5010 5015 5020 5025 5030 5035 5040 5045 5050 5055 5060 5065 5070 5075 5080 5085 5090 5095 5100 5105 5110 5115 5120 5125 5130 5135 5140 5145 5150 5155 5160 5165 5170 5175 5180 5185 5190 5195 5200 5205 5210 5215 5220 5225 5230 5235 5240 5245 5250 5255 5260 5265 5270 5275 5280 5285 5290 5295 5300 5305 5310 5315 5320 5325 5330 5335 5340 5345 5350 5355 5360 5365 5370 5375 5380 5385 5390 5395 5400 5405 5410 5415 5420 5425 5430 5435 5440 5445 5450 5455 5460 5465 5470 5475 5480 5485 5490 5495 5500 5505 5510 5515 5520 5525 5530 5535 5540 5545 5550 5555 5560 5565 5570 5575 5580 5585 5590 5595 5600 5605 5610 5615 5620 5625 5630 5635 5640 5645 5650 5655 5660 5665 5670 5675 5680 5685 5690 5695 5700 5705 5710 5715 5720 5725 5730 5735 5740 5745 5750 5755 5760 5765 5770 5775 5780 5785 5790 5795 5800 5805 5810 5815 5820 5825 5830 5835 5840 5845 5850 5855 5860 5865 5870 5875 5880 5885 5890 5895 5900 5905 5910 5915 5920 5925 5930 5935 5940 5945 5950 5955 5960 5965 5970 5975 5980 5985 5990 5995 6000 6005 6010 6015 6020 6025 6030 6035 6040 6045 6050 6055 6060 6065 6070 6075 6080 6085 6090 6095 6100 6105 6110 6115 6120 6125 6130 6135 6140 6145 6150 6155 6160 6165 6170 6175 6180 6185 6190 6195 6200 6205 6210 6215 6220 6225 6230 6235 6240 6245 6250 6255 6260 6265 6270 6275 6280 6285 6290 6295 6300 6305 6310 6315 6320 6325 6330 6335 6340 6345 6350 6355 6360 6365 6370 6375 6380 6385 6390 6395 6400 6405 6410 6415 6420 6425 6430 6435 6440 6445 6450 6455 6460 6465 6470 6475 6480 6485 6490 6495 6500 6505 6510 6515 6520 6525 6530 6535 6540 6545 6550 6555 6560 6565 6570 6575 6580 6585 6590 6595 6600 6605 6610 6615 6620 6625 6630 6635 6640 6645 6650 6655 6660 6665 6670 6675 6680 6685 6690 6695 6700 6705 6710 6715 6720 6725 6730 6735 6740 6745 6750 6755 6760 6765 6770 6775 6780 6785 6790 6795 6800 6805 6810 6815 6820 6825 6830 6835 6840 6845 6850 6855 6860 6865 6870 6875 6880 6885 6890 6895 6900 6905 6910 6915 6920 6925 6930 6935 6940 6945 6950 6955 6960 6965 6970 6975 6980 6985 6990 6995 7000 7005 7010 7015 7020 7025 7030 7035 7040 7045 7050 7055 7060 7065 7070 7075 7080 7085 7090 7095 7100 7105 7110 7115 7120 7125 7130 7135 7140 7145 7150 7155 7160 7165 7170 7175 7180 7185 7190 7195 7200 7205 7210 7215 7220 7225 7230 7235 7240 7245 7250 7255 7260 7265 7270 7275 7280 7285 7290 7295 7300 7305 7310 7315 7320 7325 7330 7335 7340 7345 7350 7355 7360 7365 7370 7375 7380 7385 7390 7395 7400 7405 7410 7415 7420 7425 7430 7435 7440 7445 7450 7455 7460 7465 7470 7475 7480 7485 7490 7495 7500 7505 7510 7515 7520 7525 7530 7535 7540 7545 7550 7555 7560 7565 7570 7575 7580 7585 7590 7595 7600 7605 7610 7615 7620 7625 7630 7635 7640 7645 7650 7655 7660 7665 7670 7675 7680 7685 7690 7695 7700 7705 7710 7715 7720 7725 7730 7735 7740 7745 7750 7755 7760 7765 7770 7775 7780 7785 7790 7795 7800 7805 7810 7815 7820 7825 7830 7835 7840 7845 7850 7855 7860 7865 7870 7875 7880 7885 7890 7895 7900 7905 7910 7915 7920 7925 7930 7935 7940 7945 7950 7955 7960 7965 7970 7975 7980 7985 7990 7995 8000 8005 8010 8015 8020 8025 8030 8035 8040 8045 8050 8055 8060 8065 8070 8075 8080 8085 8090 8095 8100 8105 8110 8115 8120 8125 8130 8135 8140 8145 8150 8155 8160 8165 8170 8175 8180 8185 8190 8195 8200 8205 8210 8215 8220 8225 8230 8235 8240 8245 8250 8255 8260 8265 8270 8275 8280 8285 8290 8295 8300 8305 8310 8315 8320 8325 8330 8335 8340 8345 8350 8355 8360 8365 8370 8375 8380 8385 8390 8395 8400 8405 8410 8415 8420 8425 8430 8435 8440 8445 8450 8455 8460 8465 8470 8475 8480 8485 8490 8495 8500 8505 8510 8515 8520 8525 8530 8535 8540 8545 8550 8555 8560 8565 8570 8575 8580 8585 8590 8595 8600 8605 8610 8615 8620 8625 8630 8635 8640 8645 8650 8655 8660 8665 8670 8675 8680 8685 8690 8695 8700 8705 8710 8715 8720 8725 8730 8735 8740 8745 8750 8755 8760 8765 8770 8775 8780 8785 8790 8795 8800 8805 8810 8815 8820 8825 8830 8835 8840 8845 8850 8855 8860 8865 8870 8875 8880 8885 8890 8895 8900 8905 8910 8915 8920 8925 8930 8935 8940 8945 8950 8955 8960 8965 8970 8975 8980 8985 8990 8995 9000 9005 9010 9015 9020 9025 9030 9035 9040 9045 9050 9055 9060 9065 9070 9075 9080 9085 9090 9095 9100 9105 9110 9115 9120 9125 9130 9135 9140 9145 9150 9155 9160 9165 9170 9175 9180 9185 9190 9195 9200 9205 9210 9215 9220 9225 9230 9235 9240 9245 9250 9255 9260 9265 9270 9275 9280 9285 9290 9295 9300 9305 9310 9315 9320 9325 9330 9335 9340 9345 9350 9355 9360 9365 9370 9375 9380 9385 9390 9395 9400 9405 9410 9415 9420 9425 9430 9435 9440 9445 9450 9455 9460 9465 9470 9475 9480 9485 9490 9495 9500

Die Anordnung einer statischen Mischerstruktur im Eingangsbereich der CO-Oxidationsstufe dient zur gleichmäßigen Verteilung und Durchmischung des Gasgemischstromes. Vor allem bei einer Zumischung des oxidierenden Gases vor der CO-Oxidationsstufe wird durch die statischen Mischerstrukturen eine Vermischung des oxidierenden Gases mit dem wasserstoffhaltigen Gasgemischstrom bewirkt. Außerdem wird der Kontakt des Gasgemischstromes mit der Außenwand des CO-Oxidationsreaktors erhöht und dadurch eine passive Kühlung des Gasgemischstromes vor dem Erreichen des aktiven Reaktionsvolumens erreicht.

Gemäß Anspruch 9 wird ein kompakter, modular aufgebauter Plattenreaktor zur selektiven katalytischen CO-Oxidation realisiert, der sich in seiner Geometrie ohne Probleme an die übrigen Systemkomponenten anpassen läßt und sich insbesondere für mobile Anwendungen in brennstoffzellengetriebenen Kraftfahrzeugen eignet. Der modulare Plattenreaktoraufbau erlaubt in Verbindung mit der Möglichkeit, längs des Reaktionsweges das oxidierende Gas in einstellbaren Mengen zuzuführen, eine hohe Raumgeschwindigkeit für den Gasgemischstrom, was es ermöglicht, den Reaktor insgesamt mit vergleichsweise geringem Volumen und Gewicht zu bauen.

Weitere Vorteile und Ausgestaltungen gehen aus den Unteransprüchen und der Beschreibung hervor. Die Erfindung ist nachstehend anhand einer Zeichnung näher beschrieben, wobei

Fig. 1 eine Prinzipdarstellung eines mehrstufigen CO-Oxidationsreaktors und

Fig. 2 eine schematische, perspektivische Explosionsansicht eines kompakten, modular aufgebauten Plattenreaktors zur selektiven katalytischen CO-Oxidation.

Der in Fig. 1 insgesamt mit 1 gekennzeichnete CO-Oxidationsreaktor besteht aus drei mit I, II und III bezeichneten Oxidationsstufen. Die einzelnen Oxidationsstufen I—III können wie in Fig. 1 dargestellt in einem gemeinsamen Reaktionsraum 2 angeordnet oder aber als separate Bauteile mit externen Verbindungsleitungen ausgeführt werden. Der wasserstoffhaltige Gasgemischstrom wird dem CO-Oxidationsreaktor 1 im Bereich der ersten Oxidationsstufe I zugeführt. In den einzelnen Reaktionsstufen I—III wird der Anteil an Kohlenmonoxid im Gasgemischstrom stufenweise auf einen Wert im Bereich < = 40 ppm reduziert. Anschließend verläßt der Gasgemischstrom den CO-Oxidationsreaktor 1 im Bereich der Oxidationsstufe III.

In den einzelnen Oxidationsstufen I—III wird das Kohlenmonoxid an geeigneten Katalysatormaterialien stufenweise durch eine selektive Oxidation reduziert. Für diese Reaktion wird zusätzlich über Einlaßöffnungen 3 ein oxidierendes Gas, vorzugsweise Sauerstoff oder Luft an mehreren Stellen vor und/oder im CO-Oxidationsreaktor 1 zum Gasgemischstrom zugeführt. An den Einlaßöffnungen 3 sind jeweils Dosievorrichtungen 4 zur geregelten oder gesteuerten Zugabe des oxidierenden Gases vorgesehen. In Fig. 1 sind diese Dosievorrichtungen 4 in Form von Ventilen eingezeichnet. Selbstverständlich können auch beliebige andere Dosievorrichtungen eingesetzt werden.

Als Katalysatormaterial für die selektive CO-Oxidation eignet sich unter anderem Platin und/oder Ruthenium auf einem Träger aus Zeolith oder Aluminiumoxid. Dieses Katalysatormaterial kann in beliebiger Form in den Reaktionsraum 2 eingebracht werden. Neben der Verwendung von Schüttungen oder Pellets ist es vorteilhaft, das Katalysatormaterial auf metallische Kataly-

satorträgereinheiten 5 aufzubringen. Diese Trägereinheiten 5 haben den Vorteil, daß sie gleichzeitig zur gezielten Strömungsführung eingesetzt werden können. Dadurch ist es möglich, den Stoffaustausch im Reaktionsraum 2 sowie den Wärmeaustausch des Gasgemischstromes mit den Wänden des Reaktionsraumes 2 zu verbessern. Für jede Oxidationsstufe I—III können hierbei ein oder mehrere dieser Katalysatorträgereinheiten 5 vorgesehen werden.

- 10 Zur Kühlung des CO-Oxidationsreaktors 1 sind von Kühlmittel durchströmte Kühlräume 6 vorgesehen. Gemäß Fig. 1 weisen die Oxidationsstufen I und II separate Kühlräume 6 auf, denen jeweils über ein Ventil 7 das Kühlmittel dosiert zugeführt wird. Vorzugsweise können die Kühlräume 6 in einem gemeinsamen Kühlkreislauf integriert werden, wobei die beiden Kühlräume 6 seriell oder parallel durchströmt werden. Wird der CO-Oxidationsreaktor 1 in einem Brennstoffzellensystem verwendet, so können die Kühlräume 6 vorzugsweise in den Kühlmittelkreislauf der Brennstoffzelle integriert werden. Denkbar ist es auch, für den gesamten CO-Oxidationsreaktor 1 einen durchgehenden Kühlraum 6 vorzusehen. Die genaue Ausbildung und Anordnung der Kühlräume 6 hängt vom verwendeten Reaktortyp ab.
- 15 Ist der CO-Oxidationsreaktor 1 beispielsweise als Plattenreaktor ausgebildet, so werden abwechselnd Platten mit integrierten Kühl- beziehungsweise Reaktionsräumen aufeinander gestapelt.

Im Eingangsbereich der I. und II. Oxidationsstufe 30 werden zusätzlich statische Mischerstrukturen 8 angeordnet. Diese haben die Aufgabe, das oxidierende Gas mit dem restlichen Gasgemischstrom ausreichend zu vermischen und eine gezielte Strömungsführung zu gewährleisten. Im Bereich dieser statischen Mischerstrukturen 8 ist kein Katalysatormaterial angeordnet. Als statische Mischerstrukturen 8 können vorzugsweise dieselben Trägereinheiten, die für das Katalysatormaterial verwendet werden, eingesetzt werden, wobei lediglich die Beschichtung mit Katalysatormaterial entfällt. Alternativ können jedoch auch poröse Platten oder andere Vorrichtungen, die die geforderten Eigenschaften aufweisen, eingesetzt werden. Der Einsatz dieser statischen Mischerstrukturen 8 weist noch einen weiteren entscheidenden Vorteil auf. Durch den verbesserten Kontakt des Gasgemischstromes mit den Außenwänden des Reaktionsraumes 2 bewirken die statischen Mischerstrukturen 8 nämlich eine passive Kühlung des eintrtenden Gasgemischstromes. Dadurch kann auf eine Vorkühlung des Gasgemischstromes mit separaten 35 Wärmetauschern verzichtet werden.

Im Austrittsbereich der I. Oxidationsstufe kann zur Verhinderung hoher lokaler Konzentrationen des oxidierenden Gases eine zusätzliche Mischerstruktur 8 vorgesehen werden. Abhängig vom herrschenden Temperaturniveau in der jeweiligen Oxidationsstufe I—III könnte es beim direkten Kontakt des zudosierten oxidierenden Gases zu Schäden am Katalysatormaterial kommen. Im Austrittsbereich der II. Oxidationsstufe kann auf die Verwendung einer Mischerstruktur verzichtet werden, da hier sowohl die CO-Konzentration als auch das Temperaturniveau bereits verringert ist. In der III. Oxidationsstufe sind weder Mischerstrukturen 8 noch ein Kühlraum 6 vorgesehen. In dieser letzten Stufe wird Kohlenmonoxid, daß im Teillastbereich durch Nebenreaktionen produziert wird, bei adiabater Betriebsweise und gleichzeitiger Reduktion der Querschnittsfläche oxidiert.

Durch das erfundungsgemäß Verfahren kann der Re-

aktionsverlauf über den gesamten CO-Oxidationsreaktor 1 auch bei dynamischen Betriebsweisen gezielt eingestellt werden. Die statischen Mischerstrukturen 8 dienen hierbei zur einfachen Einstellung der Eintrittstemperatur des Gasgemischstromes. Dieser kann somit vor dem Erreichen des Katalysatormaterials auf die gewünschte Temperatur gekühlt werden. Durch die Einstellung des Kühlmittelvolumenstroms kann weiterhin die pro Zeiteinheit abgeführte Wärmemenge eingestellt werden. Durch die definierte Zugabe des oxidierenden Gases an mehreren Stellen entlang des Reaktionsweges kann schließlich die Oxidationsreaktion selbst gezielt beeinflußt werden, da die bei der exothermen Oxidationsreaktion freiwerdende Energie von der zur Verfügung stehenden Menge an oxidierenden Gas abhängt. Durch die Kombination dieser Maßnahmen kann somit über das gesamte Reaktionsvolumen ein vorgegebener Reaktionsverlauf eingestellt werden. Hierbei können außerdem auch Betriebsparameter berücksichtigt werden, was bei dynamischen Betriebsweisen des CO-Oxidationsreaktors 1 einen wesentlichen Vorteil darstellt. In diesem Fall werden die Dosievorrichtungen 3, 7 der einzelnen Stufen vorzugsweise von einem zentralen Steuergerät angesteuert.

Ein bevorzugtes Ausführungsbeispiel für einen erfindungsgemäßen CO-Oxidationsreaktor 1 zeigt Fig. 2. Dieser kompakte Plattenreaktor läßt sich durch Hintereinanderschalten einer beliebig wählbaren Anzahl n ($n \geq 1$) einzelner Plattenreaktormodule (P₁ bis P_n) aufbauen. Die einzelnen Module (P₁ bis P_n) sind mit einander zugewandten Flachseiten beabstandet hintereinander angeordnet, wobei zwischen zwei Modulen jeweils ein wärmeaufnehmender Raum (W₁ bis W_{n-1}) gebildet ist. Nach vorne und nach hinten ist die Plattenreaktormodulreihe durch eine Frontplatte (11) bzw. eine Rückplatte (12) abgeschlossen. In der Frontplatte (11) ist in einem oberen Bereich eine Bohrung (13) als Einlaß für einen Eduktgasstrom (E) vorgesehen, der direkt ohne Zwischenkühlung vom Reformat einer Methanolheißdampfreformierung gebildet ist. Selbstverständlich können auch andere wasserstoff- und kohlenmonoxidhaltige Gasgemischströme in den Reaktor zwecks selektiver katalytischer Kohlenmonoxid (CO)-Oxidation eingeleitet werden. Im unteren Bereich besitzt die Frontplatte (11) einen Produktgasauslaß (14), aus dem der nach der CO-Oxidation erhaltene, CO-gereinigte Produktgasstrom (P_e), der im wesentlichen nur noch aus Wasserstoff besteht, austritt, wenn der Reaktor auf frontseitige Produktgasentnahme ausgelegt ist. Bei Auslegung des Reaktors auf rückseitige Produktgasentnahme ist die Rückplatte (12), wie gezeigt, mit einem entsprechenden Auslaß (14b) in ihrem unteren Bereich versehen. Beispielhaft kann bei einstufiger Reaktorauslegung eine frontseitige und bei mehrstufiger Reaktorauslegung eine rückseitige Produktgasentnahme vorgesehen sein. Die Frontplatte (11) besitzt des weiteren einen Einlaß (15) in ihrem oberen sowie einen Auslaß (16) in ihrem unteren Bereich, durch die eine Strömung (W_t) eines Wärmeträgermediums frontseitig in den Reaktor eingeleitet und frontseitig auch wieder herausgeführt wird.

Die einzelnen Reaktorplattenmodule (P₁ bis P_n) sind mit zu den oben erwähnten Ein- und Austrittsöffnungen in Frontplatte (11) und Rückplatte (12) passenden Eintritts-, Austritts- oder Durchtrittsöffnungen dergestalt versehen, daß jeweils die gewünschten Strömungsverhältnisse im Reaktor erreicht werden. Diese bestehen zum einen darin, daß das Wärmeträgermedium (W_t) Durchtrittsöffnungen (15a) in jedem Reaktormodul (P_i

bis P_n) passiert und in die jeweils dahinterliegenden, wärmeaufnehmenden Räume (W₁ bis W_{n-1}) einströmt. Dort strömt das Wärmeträgermedium entlang der begrenzenden Wände des oder der benachbarten Reaktormodule und nimmt die in diesen erzeugte Wärme auf. Das erwärmte Wärmeträgermedium tritt dann aus Durchtrittsöffnungen in den Reaktormodulen (P₁ bis P_n) wieder nach vorne aus, wobei die Austritts-Durchtrittsöffnungen den Eintritts-Durchtrittsöffnungen, von denen diejenige (15a) eines ersten Reaktormoduls (P₁) in Fig. 1 zu erkennen ist, diametral entgegengesetzt angeordnet sind, um eine vollständige Durchströmung der wärmeaufnehmenden Räume (W₁ bis W_{n-1}) zu bewirken. Bei mehrstufigem Aufbau, d. h. n > 1, besitzt jedes der n Reaktormodule (P₁ bis P_n) in den beiden übrigen, nicht von den Wärmeträgermedium-Durchtrittsöffnungen belegten Eckbereichen zwei wiederum sich diametral gegenüberliegende Öffnungen, von denen jeweils die eine eine Eintrits- und die andere eine Austrittsöffnung für das Reaktionsgasgemisch darstellen. Dabei ist die Eintrittsöffnung jeweils nur zur Modulvorderseite und die Austrittsöffnung jeweils nur zur Modulrückseite hin offen. Benachbarte Module sind so angeordnet, daß die Einlaßöffnung der hinteren Stufe an die Auslaßöffnung der vorderen Stufe angeschlossen ist. Die Austrittsöffnung der letzten Stufe (P_n) mündet in den Auslaß (14b) für den Produktgasstrom (P_m) in der Rückplatte (12). Der wasserstoff- und kohlenmonoxidhaltige Gasstrom wird auf diese Weise bei der mehrstufigen Prozeßführung als Reformat über die Frontplatte (11) in den oberen Bereich des ersten Reaktormoduls (P₁) eingeleitet, durchströmt dort einen unten näher beschriebenen Reaktionsraum (2), tritt dann im unteren Bereich vom ersten in das anschließende zweite Reaktormodul (P₂) über, strömt dort von unten nach oben durch dessen Reaktionsraum, tritt dann im oberen Bereich in das nachfolgende Reaktormodul über usw., bis es als Produktgasstrom (P_m) an der Rückplatte (12) austritt.

Bei dieser mehrstufigen Prozeßführung mit rückseitigem Produktgasaustritt wird der Produktgasauslaß (14) der Frontplatte (11) verschlossen. Entsprechend wird bei frontseitiger Produktgasentnahme dieser Auslaß (14) geöffnet, wobei außerdem dafür gesorgt wird, daß der Produktgasstrom (P_e) nicht an der Rückplatte (12) austritt. Das verwendete Reaktormodul (P_i) ist z. B. zum Zweck einer einstufigen Prozeßführung mit frontseitigem Produktgasaustritt gegenüber dem oben beschriebenen Aufbau dahingehend modifiziert, daß es eine sich zur Vorderseite hin öffnende Austrittsöffnung (14a) besitzt, wie in Fig. 1 illustrativ dargestellt. Gegebenenfalls kann diese Öffnung (14a) im ersten Modul (P₁) als Durchtrittsöffnung gestaltet werden, so daß das Modul sowohl für ein- wie auch für mehrstufige Reaktorauslegung eingesetzt werden kann, wozu dann jeweils lediglich der entsprechende Produktgasauslaß (14, 14b) in der Frontplatte (11) oder der Rückplatte (12) zu verschließen ist. Alternativ zu der gezeigten Strömungsrichtung des Wärmeträgermediums in jedem Modul (P₁ bis P_n) von oben nach unten kann alternativ die gegenläufige Strömungsrichtung vorgesehen werden. Bei Bedarf kann jede Reaktorstufe anstelle des gezeigten einen Moduls mehrere, parallel zueinander angeordnete Module enthalten, wobei die Verteilung der Fluide zu geeigneten Verteiler- und Sammelkanälen, mit denen die Reaktionsräume (2) und die wärmeaufnehmenden Räume (W₁ bis W_{n-1}) passend verbunden sind, über die Reaktorendplatten (11, 12) erfolgt. Zur Realisierung der wärmeaufnehmenden Räume (W₁ bis W_{n-1}) zwischen

den Modulreaktorräumen (4) können von den Modulen separierte Hohlräume oder an der Rück- oder Vorderseite der jeweiligen Reaktormodule angeordnete Hohlräume gebildet sein. Die Moduleinheiten können lösbar oder durch übliche Schweißverbindungen unlösbar miteinander verbunden sein, wobei jeweils geeignete Dichtungen vorzusehen sind, um abgedichtete Fluidströmungsverhältnisse für den Reaktionsgasstrom und das Wärmeträgermedium zu gewährleisten.

Zwischen seinem jeweiligen Eintritts- bzw. Austrittsbereich für das Reaktionsgasgemisch weist jedes Reaktormodul (P_1 bis P_n) einen Reaktionsraum (2) auf, in dem Katalysatorträgereinheiten (5) angeordnet sind. Die Katalysatorträgereinheiten beinhalten als Träger ein auf einen metallischen Träger aufgebrachtes Zeolith oder Al_2O_3 in Pulverform. Auf diese Trägerstruktur wird ein geeignetes Katalysatormaterial, z. B. Platin und/oder Ruthenium, aufgebracht. In den Reaktionsraum (2) jedes Moduls (P_1 bis P_n) sind vorzugsweise mehrere Katalysatorträgereinheiten (5) eingebracht, und zwar sowohl mehrere Einheiten parallel wie auch seriell zur Reaktionsgasströmung. Alternativ kann jedoch auch nur eine Einheit (5) parallel und mehrere, beispielsweise 4 seriell angeordnet werden. Nach unten und oben wird der mit dem Katalysatorträgereinheiten (5) belegte Reaktionsraum (2) jeweils von einer porösen Sintermetallplatte oder einem porösen Vliesmaterial abgedeckt, mit der der Gasgemischstrom homogen über die Katalysatorträgereinheiten (5) verteilt wird. Zusammen mit den Katalysatorträgereinheiten (5) ermöglichen diese porösen Deckschichten (18a, 18b) zudem eine Abstützung der einzelnen Modulkomponenten untereinander, was dazu beitragen kann, eine homogene Abdichtung zwischen den unterschiedlichen Medien zu erreichen.

Wie aus Fig. 1 erkennbar, besteht eine wesentliche Eigenschaft des Plattenreaktors darin, daß jedes Reaktormodul (P_1 bis P_n) mit in den Reaktionsraum (2) führenden Einlaßöffnungen (3) auf unterschiedlicher Höhe bezüglich der Strömungsrichtung des Gasgemischstromes versehen sind, über die das zur CO-Oxidation benötigte Oxidationsmittel, z. B. Luft oder Sauerstoff, vor und/oder zwischen den einzelnen Katalysatorträgereinheiten (5) eingeleitet wird. Beim gezeigten Beispiel wird das oxidierende Gas in ein vorderes Reaktormodul eingeleitet. Neben der Möglichkeit einer aufwendigen Regelung der Oxidationsmittelzufluhr zu den einzelnen Einlaßöffnungen kann die lokale Dosierung auch mit geringem Aufwand durch passive Strömungsverteiler-elemente, wie z. B. Blenden, erfolgen. Da die Menge an zugeführtem oxidierendem Gas jeweils das Ausmaß an dort stattfindender, exothermer CO-Oxidation bestimmt, läßt sich auf diese Weise gleichzeitig die Temperatur im Reaktor im Zusammenspiel mit den übrigen hierfür relevanten Parametern auf praktisch jedes gewünschte Temperaturprofil entlang des Strömungswege des Reaktionsgasgemisches einstellen. Dies hat zum einen zur Folge, daß das Edukt (E) aus einer Methanolheißdampfreformierung direkt ohne die übliche Reformatzwischenkühlung in den CO-Oxidationsreaktor z. B. mit einer Temperatur von ca. 250°C eingeleitet werden kann, was einen entsprechenden Reformatkühler entbehrlich macht oder jedenfalls eine kleinere Auslegung desselben erlaubt. Um bei Verwendung des Plattenreaktors vor einem Brennstoffzellensystem den Produktgasstrom, der im wesentlichen aus reinem Wasserstoff besteht, direkt als Brennstoff in das Brennstoffzellensystem einleiten zu können, wird das durch den Reaktor geleitete Wärmeträgermedium (Wt) auf der Brennstoff-

zellentemperatur, z. B. auf ca. 80°C , gehalten, so daß das durch den Reaktor strömende Reaktionsgasgemisch von der Reformattemperatur am Reaktoreingang auf die Brennstoffzellentemperatur am Rektorausgang abkühlen kann. Der dadurch im Reaktor entstehende Temperaturgradient kann vorteilhaft für die selektive katalytische CO-Oxidation genutzt werden, wobei neben der Oxidationsmittelzufluhr auch die übrigen Faktoren, wie die Katalysatorbelegung, längs des Strömungsweges des Reaktionsgasgemisches durch den Reaktor in jeweils passender Weise eingestellt werden.

Die obige Beschreibung macht deutlich, daß mit dem erfundungsgemäß Reaktor bei relativ geringem Aufwand eine selektive katalytische Oxidation von im Eduktstrom (E) einer Methanolheißdampfreformierung enthaltenem Kohlenmonoxid auf eine sehr flexible Weise durchführbar ist. Insbesondere kann der heiße Reformatgasstrom (P_e, P_m) direkt in den Reaktor geleitet und der aus tretende Produktgasstrom direkt einer Brennstoffzelle als Brennstoff zugeführt werden. Durch gezielte lokale Einstellung der zugeführten Menge an oxidierendem Gas in Abhängigkeit vom Reaktionsweg läßt sich ein gewünschtes Temperaturprofil im Reaktor einstellen, so daß für jeden Anwendungsfall die günstigsten Reaktionsbedingungen zur höchstmöglichen CO-Entfernung eingestellt werden können. Der Reaktor kann mit vergleichsweise großer Raumgeschwindigkeit gefahren werden und weist ein stabiles Umsatzverhalten auf. Durch den modularen Aufbau kann die Reaktorgröße sowohl hinsichtlich der Anzahl hintereinanderliegender Reaktorstufen als auch hinsichtlich der Größe jeder einzelnen Stufe auf den gegebenen Anwendungsfall hin mit nur geringem Aufwand optimiert bzw. durch Hinzufügen oder Wegnehmen einzelner Module sehr leicht modifiziert werden. Durch die Führung des Reaktionsgasgemisches jeweils in der Plattenebene hintereinanderliegender Modulplatten besitzt der kompakte Plattenreaktor bei gegebener Reaktionsweglänge sehr geringe Abmessungen. Es versteht sich, daß erfundungsgemäß Reaktoren und die mit ihnen durchführbaren erfundungsgemäß Verfahren nicht auf die CO-Entfernung aus dem Reformat einer Methanolheißdampfreformierung beschränkt sind, sondern sich auch für andere Anwendungen eignen, in denen Kohlenmonoxid durch selektive katalytische Oxidation aus einem wasserstoffreichen Gasgemisch entfernt werden soll.

Patentansprüche

1. Verfahren zur selektiven katalytischen Oxidation von in einem wasserstoffhaltigen Gasgemischstrom enthaltenem Kohlenmonoxid, wobei der Gasgemischstrom, dem zusätzlich an mehreren Stellen ein oxidierendes Gas zugeführt wird, durch einen das Katalysatormaterial enthaltenden und eine Kühlvorrichtung aufweisenden CO-Oxidationsreaktor hindurchgeleitet wird, und wobei zur Regelung der Reaktortemperatur der Kühlmittelvolumenstrom eingestellt wird, dadurch gekennzeichnet, daß die Temperatur des Gasgemischstromes beim Eintritt in den CO-Oxidationsreaktor (1) mit Hilfe von statischen Mischerstrukturen (8) verringert wird und daß das oxidierende Gas jeweils mit einer in Abhängigkeit von Betriebsparametern vorgegebenen Durchflußmenge in den Gasgemischstrom eingeleitet wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Menge an zugeführtem oxidieren-

den Gas im Verhältnis zum wasserstoffhaltige Gasgemischstrom in Abhängigkeit von Betriebsparametern variiert wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß beim Starten des Systems der Kühlmittelvolumenstrom für eine vorgegebene Zeitdauer reduziert wird. 5

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein mehrstufiger CO-Oxidationsreaktor (1) verwendet wird, wobei zumindest vor jeder Oxidationsstufe (I—III) oxidierendes Gas zum Gasgemischstrom zugeführt wird, und daß durch Steuerung oder Regelung des Kühlmittelvolumenstroms und der Menge des zugeführten oxidierenden Gases die jeweiligen Oxidationsstufen (I—III) 15 auf vorgegebenen Betriebstemperaturen gehalten werden.

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

- das wasserstoff- und kohlenmonoxidhaltige Gasgemisch das Reformat einer Kohlenwasserstoffreformierung ist und ohne Zwischenkühlung in den CO-Oxidationsreaktor (1) eingeleitet wird,

- das aus dem CO-Oxidationsreaktor (1) austretende, kohlenmonoxidgereinigte Gas einer Brennstoffzelle zugeführt wird und

- zur Kühlung des CO-Oxidationsreaktors (1) der Brennstoffzellen-Kühlkreislauf verwendet wird. 30

6. Vorrichtung zur selektiven katalytischen Oxidation von in einem wasserstoffhaltigen Gasgemischstrom enthaltenem Kohlenmonoxid mit zumindest einer Katalysatormaterial enthaltenden und eine Kühlvorrichtung aufweisenden CO-Oxidationsstufe und mit mehreren Einlaßöffnungen zur Zufuhr von oxidierendem Gas zum Gasgemischstrom, wobei zur Regelung der Reaktortemperatur der Kühlmittelvolumenstrom eingestellt wird, dadurch gekennzeichnet, daß eine Vorrichtung (4) zur betriebsparameterabhängigen Dosierung des jeweils zugeführten oxidierenden Gases vorgesehen ist und daß im Eingangsbereich der CO-Oxidationsstufe (I—III) eine statische, kein Katalysatormaterial enthaltende Mischerstruktur (8) angeordnet ist. 45

7. Vorrichtung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß jeweils im Bereich und/oder stromab und/oder stromauf der Einlaßöffnungen (3) statische Mischerstrukturen (8) vorgesehen sind.

8. Vorrichtung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere solcher CO-Oxidationsstufen (I—III), die durch einen gemeinsamen Kühlkreislauf gekühlt werden, hintereinandergeschaltet werden und daß zusätzlich eine letzte, ungekühlte CO-Oxidationsstufe (III) mit erhöhter Gasströmungsgeschwindigkeit vorgesehen ist. 55

9. Vorrichtung nach Anspruch 6, gekennzeichnet durch, einen modularen Aufbau aus einem oder mehreren, hintereinander angeordneten Plattenreaktormodulen (P_1 bis P_n), von denen jedes einen Gasgemischeinlaß, einen Gasgemischauslaß, einen zwischen dem Gasgemischeinlaß und dem Gasgemischauslaß angeordneten, das Katalysatormaterial enthaltenden Reaktionsraum (2) sowie eine oder mehrere, längs des Gasgemischströmungsweges im Reaktionsraum (2) hintereinanderliegend angeordnete Einlaßöffnungen (3) für ein direkt in den Reaktionsraum (2) einzuleitendes, oxidierendes Gas auf-

weist.

10. Vorrichtung nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß an der Eingangsseite des Reaktionsraumes (2) eines jeweiligen Reaktormoduls (P_1 bis P_n) eine poröse Gasgemischverteilerstruktur (18a) angeordnet ist.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

Fig. 2

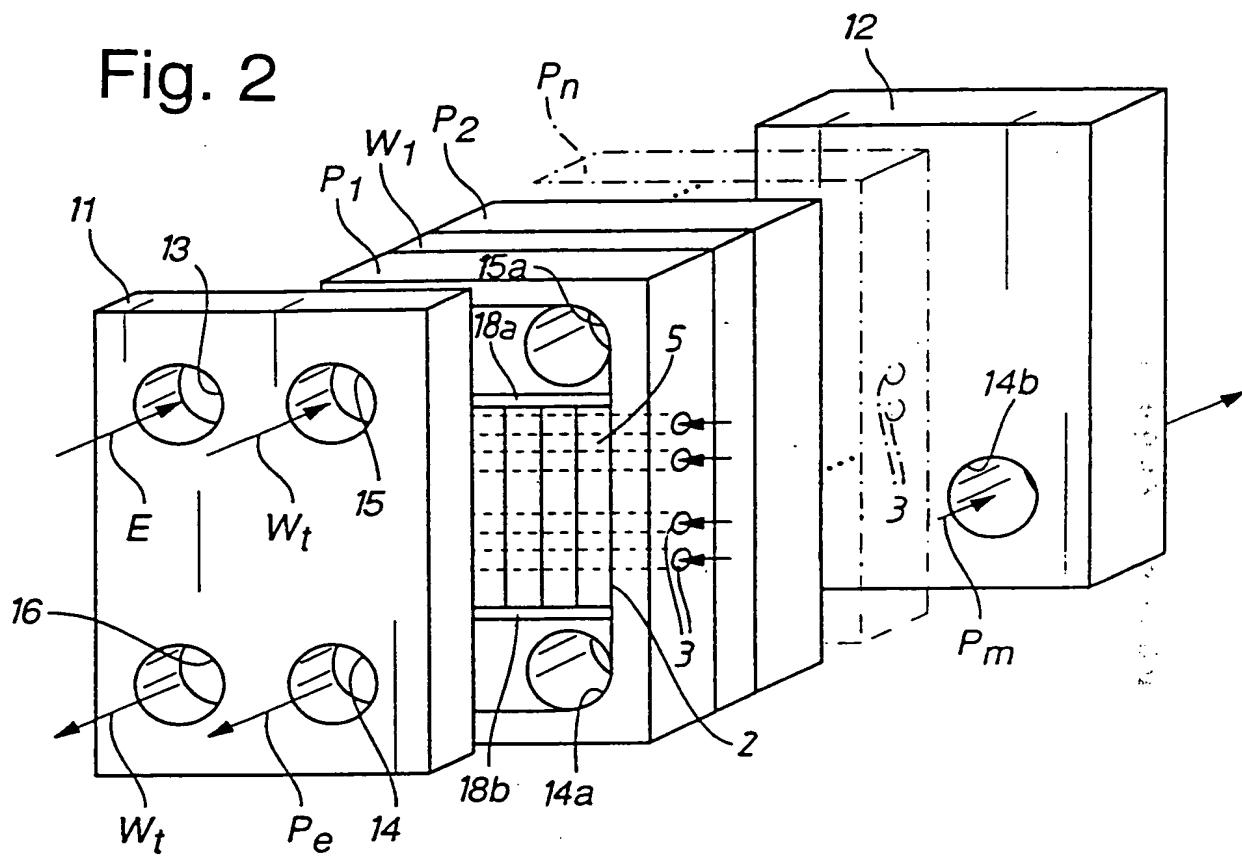


Fig. 1

